

リン添加層状窒化炭素膜の化学気相成長

Chemical Vapor Deposition of Phosphorus-Incorporated Layered Carbon Nitride Film

信州大工¹, 信州大 先鋭材料研究所² ○栗本 菜津子¹, 浦上 法之^{1,2}, 橋本 佳男^{1,2}Shinshu Univ.¹, Shinshu Univ. RISM² ○Natsuko Kurimoto¹, Noriyuki Urakami^{1,2}, Yoshio Hashimoto^{1,2}

E-mail: urakami@shinshu-u.ac.jp

電気電子工学に関連する物理性質を融合した新たな電子素子を実現するための候補材料として、炭素(C)と窒素(N)のみから成り低環境負荷半導体である層状窒化炭素($g-C_3N_4$)に注目が集まっている。さらなる機能性向上のために、欠陥の導入や異種元素の添加など様々な方法が提案されている[1]。本研究室ではこれまでに、 $g-C_3N_4$ 膜へのホウ素や水素の添加が検討されてきた[2][3]。本研究では、新たに $g-C_3N_4$ 膜へのリン(P)原子の添加に着目し、結晶評価と性質に対するその効果の調査を行った。

試料の作製には、メラミン($C_3H_6N_6$)粉末を前駆体とした化学気相堆積(CVD)法を用いた[4]。無添加 $g-C_3N_4$ 膜および P 添加 $g-C_3N_4$ 膜を c 面サファイア基板上に窒素ガス雰囲気下にて作製した。P 源として赤リン粉末を用いた。基板温度および赤リンの重量を変え、 $g-C_3N_4$ 膜内における P 濃度の制御を試みた。X 線光電子分光(XPS)分析におけるスペクトル解析により、試料の化学結合状態の特徴付けを行い、原子組成比の赤リン重量依存性を調査した。

無添加 $g-C_3N_4$ 膜の XPS スペクトルから、288.0 eV 付近に C 1s ピーク、398.8 eV 付近に N 1s ピーク、532.4 eV 付近に O 1s ピークを示した。P 添加 $g-C_3N_4$ 膜の XPS スペクトルからはこれらに加えて、134.0 eV および 191.2 eV 付近にそれぞれ P 2p ピークと P 2s ピークが観測され、 $g-C_3N_4$ 膜に P 原子が組み込まれていることを示唆した。図 1 に基板温度 620 °C にて作製した $g-C_3N_4$ 膜の C 1s、N 1s および P 2p の XPS スペクトルを示す。N 1s スペクトルにおいて 397.8 eV、P 2p スペクトルにおいて 133.4 eV および 134.2 eV に位置する新たな成分が見られ、これらはそれぞれ、N-P、P-N、P=N 結合に由来する可能性がある[5]。また、赤リン重量の増加とともに C 1s スペクトルにおける N-C=N 由来のピーク(288.3 eV)、N 1s スペクトルにおける C-N=C 由来のピーク(398.8 eV)の信号強度が減少した。その一方で、N 1s スペクトルにおける N-(C)₃由来のピーク(400.0 eV)はその強度に大きな変化がないことから、P 原子の $g-C_3N_4$ 結晶格子内の端の C 原子と置換をしている可能性がある。基板温度 600 から 675°C に変化させて作製した P 添加 $g-C_3N_4$ 膜の C、N および P 組成比の赤リン重量の依存性を図 2 に示す。赤リン重量の増加とともに、C 組成の減少および P 組成の増加が見られ、 $g-C_3N_4$ 膜の格子における C 原子の P 原子による置換を示唆している。

[謝辞] 本研究の一部は、科研費(21K14194)、マツダ財団(21KK-206)および池谷科学技術振興財団(0351081-A)の援助を受けて行われた。

[参考文献] [1]例えば、Y. Liu, et al., Appl. Phys. Lett. **110**, 222403 (2017). [2] N. Urakami, et al., Phys. Status Solidi B **257**, 1900375 (2020). [3] N. Urakami, et al., CrystEngComm **25**, 877-883 (2023). [4] N. Urakami, et al., Jpn. J. Appl. Phys. **58**, 010907 (2019). [5] J. Feng, et al., ACS Sustain. Chem. Eng. **6**, 6342-6349 (2018).

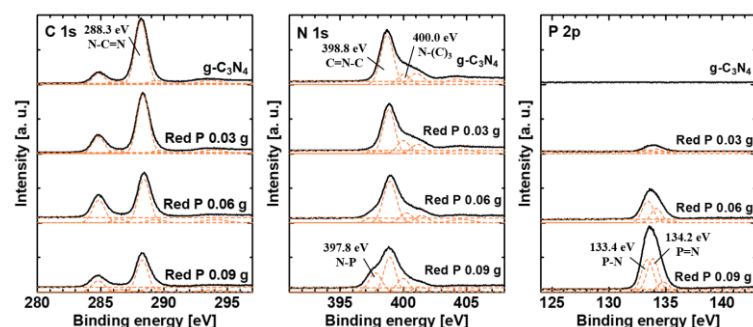


Fig. 1 C 1s, N 1s, and P 2p core signals of XPS.

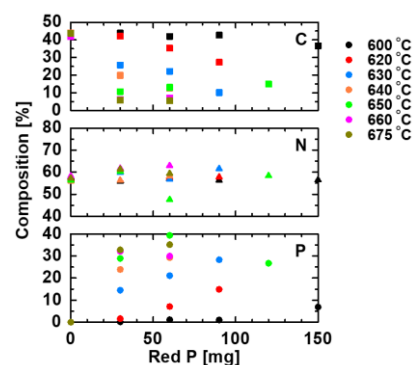


Fig. 2 Composition of C, N, and P atoms depended on weight of Red P.